

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-031610

(43)Date of publication of application : 02.02.1999

(51)Int.Cl.

H01F 1/06
B22F 1/00
B22F 3/00
// C22C 38/00

(21)Application number : 09-186619

(71)Applicant : MITSUBISHI MATERIALS CORP

(22)Date of filing : 11.07.1997

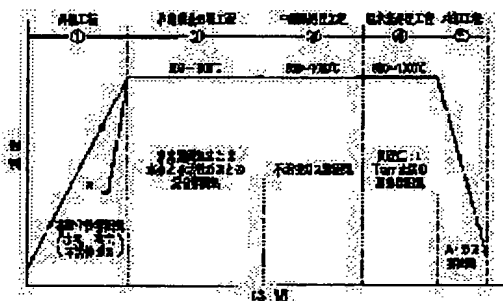
(72)Inventor : NAKAYAMA RYOJI
ISHII YOSHINARI
FUKATSU NOBUTO
MORIMOTO KOICHIRO

(54) MANUFACTURE OF RARE-EARTH MAGNET POWDER WITH SUPERIOR MAGNETIC ANISOTROPY

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide the manufacturing method of rare-earth magnet powder having superior magnetic characteristics.

SOLUTION: This manufacturing method contains a heating-up process (1) in which an R-T-M alloy raw material containing a component T, wherein R and Fe or a part of Fe is replaced with Co and Ni, and a component M, wherein B or a part of B is replaced with C, as the main component, is heated up from room temperature to 500° C in a non-oxidizing atmosphere. The temperature is retained, a hydrogen occlusion treatment process (2) in which the R-T-M alloy raw material is heated up to 500 to 1000° C in a hydrogen atmosphere or in a hydrogen and inert gas mixed atmosphere and the temperature is retained, an intermediate heat treatment process (3) in which the R-T-M alloy raw material on which hydrogen occlusion treatment is finished, is retained within the range of 500 to 1000° C in an inert gas atmosphere, a dehydrogenation treatment process (4) in which the R-T-M alloy raw material is dehydrogenation-treated in a vacuum atmosphere of 1 Torr or lower at the temperature of 500 to 1000° C, and a cooling process (5).



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-31610

(43) 公開日 平成11年(1999) 2月2日

(51) Int.Cl.⁸
 H 0 1 F 1/06
 B 2 2 F 1/00
 3/00
 // C 2 2 C 38/00 3 0 3

F I
 H 0 1 F 1/06 A
 B 2 2 F 1/00 Y
 3/00 F
 C 2 2 C 38/00 3 0 3 D

審査請求 未請求 請求項の数7 O L (全 21 頁)

(21) 出願番号 特願平9-186619

(22) 出願日 平成9年(1997) 7月11日

(71) 出願人 000006264

三菱マテリアル株式会社

東京都千代田区大手町1丁目5番1号

(72) 発明者 中山 亮治

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリアル株式会社総合研究所内

(72) 発明者 石井 義成

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリアル株式会社総合研究所内

(72) 発明者 深津 宜人

埼玉県大宮市北袋町1-297 三菱マテリアル株式会社総合研究所内

(74) 代理人 弁理士 富田 和夫 (外1名)

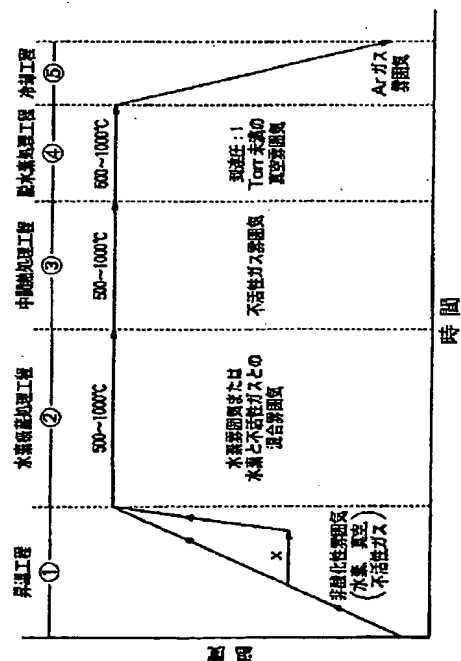
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 優れた磁気特性を有する希土類磁石粉末の製造方法を提供する。

【解決手段】 Rと、FeあるいはFeの一部をCo、Niで置換した成分Tと、BあるいはBの一部をCで置換した成分Mを主成分として含有するR-T-M系合金原料を、非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持する①の昇温工程、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持する②の水素吸蔵処理工程、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持する③の中間熱処理工程、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で1 Torr未満の真空雰囲気中に保持する脱水素処理を施す④は脱水素処理工程、および⑤の冷却工程からなる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 Yを含む少なくとも一つの希土類元素（以下、Rで示す）と、FeあるいはFeの一部をCo、Niで置換した成分（以下、Tで示す）と、BあるいはBの一部をCで置換した成分（以下、Mで示す）を主成分として含有する合金原料（以下、この合金原料をR-T-M系合金原料という）を、非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、

水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続き、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉砕することを特徴とする、微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項2】 RとTとMを主成分とし、さらに、Si、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Al、Ti、Vのうち1種または2種以上（以下、Aで示す）：0.001～5.0原子%を含有する合金原料（以下、この合金原料をR-T-M-A系合金原料という）を、

非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M-A系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続き、水素吸蔵処理を施したR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、

さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M-A系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉砕することを特徴とする、微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項3】 真空またはArガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持の条件で均質化処理したR-T-M系合金原料を、

非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの

所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、

水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続き、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉砕することを特徴とする、微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項4】 真空またはArガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持の条件で均質化処理したR-T-M-A系合金原料を、

非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M-A系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続き、水素吸蔵処理を施したR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、

さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M-A系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉砕することを特徴とする、微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項5】 前記中間熱処理における不活性ガス雰囲気は、圧力：0.5～11atmの範囲内にある不活性ガス雰囲気であることを特徴とする請求項1、2、3または4記載の微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法。

【請求項6】 請求項1、2、3、4または5記載の製造方法により得られた微細なR、T、M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末を有機バインダーまたは金属バインダーにより結合することを特徴とする希土類磁石の製造方法。

【請求項7】 請求項1、2、3、4または5記載の製造方法により得られた磁気異方性に優れた希土類磁石粉末を圧粉体とし、この圧粉体を温度：600～900℃でホットプレスまたは熱間静水圧プレスすることを特徴

とする希土類磁石の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法に関するものであり、さらにこの希土類磁石粉末を用いた希土類磁石の製造方法に関するものである。

【0002】

【従来の技術】Yを含む少なくとも一つの希土類元素（以下、Rで示す）と、FeあるいはFeの一部をC、Niで置換した成分（以下、Tで示す）と、BあるいはBの一部をCで置換した成分（以下、Mで示す）を主成分として含有する合金原料（以下、この合金原料をR-T-M系合金原料という）、さらにR-T-M系合金原料にSi、Ga、Zr、Nb、Mo、Hf、Ta、W、Al、Ti、Vのうち1種または2種以上（以下、Aで示す）：0.001～5.0原子%を含有する合金原料（以下、この合金原料をR-T-M-A系合金原料という）を、Arガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持して均質化处理し、または均質化处理せずに、R-T-M-A系合金原料をH₂ガスまたはH₂ガスと不活性ガスの混合ガス雰囲気中で、室温から温度：500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持して水素吸蔵処理し、引き続いて、真空雰囲気中、温度：500～1000℃に保持して脱水素処理し、ついで冷却し、粉碎して希土類磁石粉末を製造する方法は、特開平2-4901号公報などに記載されており知られている。

【0003】

【発明が解決しようとする課題】近年、電気および電子業界では磁石部品の一層の小型化および高性能化のために従来よりも一層磁気異方性に優れた希土類磁石粉末が求められている。しかし、いまだ十分な磁気異方性を有する希土類磁石粉末は得られていない。

【0004】

【課題を解決するための手段】そこで、本発明者らは、従来よりも一層磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法を開発すべく研究を行った結果、(a) R-T-M系合金またはR-T-M-A系合金原料を非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M系合金またはR-T-M-A系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続いて、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金またはR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr以下の真空雰囲気中

に保持することによりR-T-M系合金またはR-T-M-A系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施すと、微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する一層磁気異方性に優れた希土類磁石粉末を製造することができる。(b) R-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料は、真空またはArガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持することにより均質化处理したR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料を使用することが一層好ましい。(c) 前記水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金またはR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持する中間熱処理は、圧力：0.5～11 atmの範囲内の所定の圧力の不活性ガス雰囲気で行うことが好ましい、などの知見を得たのである。

【0005】この発明は、かかる知見に基づいて成されたものであって、(1) R-T-M系合金原料を、非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続いて、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉碎する、微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法、(2) 真空またはArガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持することにより均質化处理したR-T-M系合金原料を、非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で室温から500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続いて、水素吸蔵処理を施したR-T-M系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉碎する、微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法、(3) R-T-M-A系合金原料を、非

酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M-A系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続いて、水素吸蔵処理を施したR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 T o r r 未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M-A系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉碎する、微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法、(4) 真空またはA r ガス雰囲気中、温度：600～1200℃に保持することにより均質化処理したR-T-M-A系合金原料を、非酸化性雰囲気中で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し保持したのち、水素雰囲気中または水素と不活性ガスの混合ガス雰囲気中で500～1000℃の範囲内の所定の温度に昇温し保持することにより前記R-T-M-A系合金原料に水素を吸蔵させて相変態を促す水素吸蔵処理を施し、引き続いて、水素吸蔵処理を施したR-T-M-A系合金原料を500～1000℃の範囲内の所定の温度で不活性ガス雰囲気中に保持することにより中間熱処理を行い、さらに500～1000℃の範囲内の所定の温度で到達圧：1 T o r r 未満の真空雰囲気中に保持することによりR-T-M系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す脱水素処理を施したのち、冷却し、ついで粉碎する、微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法、(5) 前記(1)、

(2)、(3)または(4)記載の中間熱処理の不活性ガス雰囲気は、圧力：0.5～11 a t m の不活性ガス雰囲気である微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法、に特徴を有するものである。

【0006】この発明の方法により製造した微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末を有機バインダーまたは金属バインダーにより結合することにより、または温度：600～900℃でホットプレスまたは熱間静水圧プレスすることにより希土類磁石を製造することができる。従って、この発明は、(6) 前記(1)、(2)、(3)、(4)または(5)記載の製造方法により得られた磁気異方性に優れた希土類磁石粉末を有機バインダーまたは金属バインダーにより結合する希土類磁石の製造方法、(7) 前記(1)、(2)、(3)、(4)または(5)記載の製造方法により得られた磁気異方性に

優れた希土類磁石粉末を圧粉体とし、この圧粉体を温度：600～900℃でホットプレスまたは熱間静水圧プレスする希土類磁石の製造方法、に特徴を有するものである。

【0007】この発明の希土類磁石粉末の製造方法の特徴は、従来の希土類磁石粉末の製造方法の水素吸蔵処理工程と脱水素処理工程の間に、500～1000℃の範囲内の所定の温度で圧力：0.5～11 a t m の不活性ガス雰囲気中に保持する中間熱処理工程を挿入することである。

【0008】水素吸蔵処理した後で中間熱処理を行うことにより、水素吸蔵処理中に水素を吸蔵して相分解した処理合金中に組織変化が起こり、その後に脱水素処理を行うことによりR₂T₁₄M型金属間化合物相のc軸がより一層一方向に揃った微細な再結晶集合組織を有する希土類磁石粉末が得られ、従来の方法で製造した希土類磁石粉末よりも磁気異方性と保磁力が向上するものと考えられる。

【0009】この発明の微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法を図面を用いて説明する。図1は、この発明の微細なR₂T₁₄M型金属間化合物相の再結晶集合組織を有する磁気異方性に優れた希土類磁石粉末の製造方法における熱処理パターンを示しており、昇温工程、水素吸蔵処理工程、中間熱処理工程、脱水素処理工程および冷却工程における温度、時間および雰囲気の関係を示している。図1において、①は昇温工程、②は水素吸蔵処理工程、③は中間熱処理工程、④は脱水素処理工程、⑤は冷却工程を示す。

【0010】①の昇温工程は、R-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料を非酸化性雰囲気（例えば、水素ガス雰囲気、真空雰囲気または不活性ガス雰囲気など）で室温から温度：500℃未満までの所定の温度に昇温、または昇温し500℃未満までの所定の温度x（例えば、100℃）に保持した後再び昇温する工程である。

【0011】②は水素吸蔵処理工程は、R-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料を水素ガス雰囲気または水素ガスと不活性ガスの混合ガス雰囲気中で温度：500～1000℃の範囲内の所定の温度に保持し、原料に水素を吸蔵させて相変態を促す工程である。

【0012】③の中間熱処理工程は、水素吸蔵処理したR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料を不活性ガス雰囲気（好ましくは圧力：0.5～11 a t m、さらに好ましくは0.5～2 a t m）の不活性ガス雰囲気中で温度：500～1000℃（好ましくは650～950℃、さらに好ましくは750～900℃）の範囲内の所定の温度に30秒～5時間（好ましくは0.5分～1時間、さらに好ましくは1分～30分）の範囲内の所定の時間保持する工程である。この③の中間熱処

理工程は圧力：0.5～2 atmのArガス雰囲気中、温度：750～900℃に1分～30分保持することにより行うことが最も好ましい。また、②の水素吸蔵処理工程の水素ガス雰囲気または水素ガスと不活性ガスの混合ガス雰囲気を置換する形で③の中間熱処理工程の不活性ガスを導入することが好ましい。この③の中間熱処理工程はこの発明の最も特徴とする処理工程であり、この③の中間熱処理工程を②の水素吸蔵処理工程後に行うことにより、水素を吸蔵して相分解した処理合金中に組織変化が起こり、その後に脱水素処理を行うことによりR、T、M型金属間化合物相のc軸がより一層一方向に揃った微細な再結晶集合組織を有する希土類磁石粉末が得られ、従来の方法で製造した希土類磁石粉末よりも磁気異方性と保磁力が向上するものと考えられる。

【0013】④の脱水素処理工程は、到達圧：1 Torr未満の真空雰囲気中、温度：500～1000℃の範囲内の所定の温度に保持することによりR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料から強制的に水素を放出させて相変態を促す処理であり、③の中間熱処理工程で放出されなかった水素を十分に除去する工程である。この④の脱水素処理工程の後、⑤の冷却工程で不活性ガス（Arガス）より室温まで冷却する。

【0014】

【発明の実施の形態】

実施例1

高周波真空溶解炉を用いて溶解し、得られた溶湯を鑄造し、表1に示される成分組成のR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料の鑄塊a～jを製造し

た。得られたR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料を10mm以下のブロックとし、鑄塊a～jをそれぞれ表2～5に示される条件で室温から昇温または昇温し所定の温度で保持し、その後、表2～5に示される条件で水素吸蔵処理を行い、引き続いて表2～5に示される条件で中間熱処理を行い、さらに表2～5に示される条件で脱水素処理を行った後、Arガスで強制的に室温まで冷却し、300μm以下に粉碎して希土類磁石粉末を製造することにより本発明法1～28、比較法1～2および従来法1～10を実施した。

【0015】本発明法1～28、比較法1～2および従来法1～10により得られた希土類磁石粉末にそれぞれ3重量%のエポキシ樹脂を加えて混練し、20kOeの磁場中で圧縮成形して圧粉体を作製し、この圧粉体をオープンで150℃、2時間熱硬化して、密度：6.0～6.1g/cm³のボンド磁石を作製し、得られたボンド磁石の磁気特性を表6～9に示した。

【0016】さらに、本発明法1～28、比較法1～2および従来法1～10により得られた希土類磁石粉末を磁場中で異方性圧粉体を作製し、この異方性圧粉体をホットプレス装置にセットし、磁場の印加方向が圧縮方向になるようにArガス中、温度：750℃、圧力：0.6Ton/cm²、1分間保持の条件でホットプレスを行い、急冷して密度：7.5～7.7g/cm³のホットプレス磁石を作製し、得られたホットプレス磁石の磁気特性を表6～9に示した。

【0017】

【表1】

種 別	成分組成 (原子%) (ただし、残部: Fe)
鑄塊	a Nd:12.0%, Co:16.5%, B:6.2%, Zr:0.2%, Al:0.5%
	b Nd:11.0%, Dy:1.2%, Pr:0.2%, Co:5.7%, B:6.0%, Zr:0.1%, Ti:0.3%
	c Nd:12.0%, Pr:0.3%, Co:20.0%, B:6.5%, C:0.05%, Zr:0.2%, Ga:0.5%
	d Nd:12.0%, Dy:0.6%, B:7.0%, Hf:0.1%, Nb:0.2%, Si:0.1%
	e Nd:6.5%, Pr:6.0%, Co:18.7%, B:5.8%, Hf:0.1%, Ta:0.2%, Ga:0.5%
	f Nd:11.5%, Dy:0.6%, Pr:0.3%, Co:9.0%, B:6.0%, Zr:0.1%, Ga:0.3%
	g Nd:12.3%, Ce:0.1%, Pr:0.2%, Co:16.5%, B:6.2%, Zr:0.5%, Ga:0.5%,
	h Nd:14.1%, La:0.1%, Pr:0.2%, Co:20.1%, B:6.5%, Nb:0.5%, Ga:1.0%
	i Nd:12.1%, Pr:0.5%, Co:18.0%, B:6.0%, C:0.1%
	j Nd:11.2%, Dy:0.3%, Pr:0.3%, Co:11.7%, Ni:1.0%, B:5.5%, C:0.2%, Zr:0.05%, Mo:0.2%, Al:0.7%

【0018】

* * 【表2】

種 別	鑄塊	昇温処理	水素吸蔵処理			中間熱処理			炭素素処理		
		室温から500℃未満までの昇温気	水素圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	Ar圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	到達圧力 (Torr)	保持温度 (℃)	保持時間 (時間)
本発明	1	a 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	850	20	1	850	10	0.98	830	40
	2	b 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	5	850	20	1	850	10	0.98	830	40
	3	c 室温から200℃まで真空、200℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	830	60	1.2	840	5	0.05	820	50
	4	d 室温から200℃まで真空、200℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	830	60	1.2	840	5	0.05	820	50
	5	e 室温から200℃まで真空、200℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	830	60	1.2	840	5	0.5	820	50
	6	f 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	2	850	120	1	850	10	0.05	850	60
	7	g 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	850	120	2	850	10	0.2	850	60
	8	h 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	850	120	2	850	10	0.02	850	60
	9	i 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	850	120	1	850	10	0.2	850	60
	10	j 室温から100℃まで真空、100℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1.5	850	120	1	850	10	0.001	850	60

【0019】

【表3】

種別	試験	昇温処理	水素吸蔵処理			中間熱処理			脱水素処理		
			水素圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	He圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	到達圧力 (Torr)	保持温度 (℃)	保持時間 (時間)
本 発 明 法	11 a	室温から500℃未満までの 雰囲気	1	820	30	1	820	10	0.05	820	40
	12 b	室温から100℃まで真空 100℃で1気圧の水素中に 30分保持した後1気圧の H ₂ 中で500℃未満まで 昇温	3	880	60	1	850	10	0.01	850	30
	13 c		0.8	860	10	2	860	5	0.02	840	50
	14 d		2	800	30	2	820	20	0.02	830	60
	15 e		1	920	120	1	850	10	0.01	800	60
	16 f	Arガス中で室温から200℃ まで昇温し、Arガス中で 200℃に60分保持後、 Arガス中で500℃未満まで 昇温	2	800	30	2	820	20	0.005	770	60
	17 g		0.5	890	60	3	770	60	0.01	800	50
	18 h		1	840	60	1	840	20	0.002	770	60
	19 i		0.7	780	10	0.5	850	10	0.50	850	30
	20 j		1	800	120	0.8	800	40	0.1	800	50

【0020】

* * 【表4】

種別	試験	昇温処理	水素吸蔵処理			中間熱処理			脱水素処理		
			水素圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	Ar圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	到達圧力 (Torr)	保持温度 (℃)	保持時間 (時間)
本 発 明 法	21 c	室温から200℃まで真空、 200℃で30分間1気圧H ₂ に保持したの ち、200℃から500℃未満まで1気圧H ₂	1	830	60	0.3	840	5	0.05	820	50
	22 c		1	830	60	0.5	840	5	0.05	820	50
	23 c		1	830	60	5.0	840	5	0.05	820	50
	24 c		1	830	60	11.0	840	5	0.05	820	50
	25 c		1	830	60	1.2	840	300	0.05	820	50
	26 a		1	830	60	1.2	840	30	0.05	820	50
	27 e		1	830	60	1.2	840	5	0.05	820	50
	28 e		1	830	60	1.2	840	0.5	0.05	820	50
	1 c		1	830	60	13.0*	840	5	0.05	820	50
	2 c		1	830	60	1.2	1050*	0.5	0.05	820	50

【0021】

【表5】

種 別		焼成	昇 温 処 理	水 素 吸 着 処 理			中 間 熱 処 理			脱 水 素 処 理		
			室温から500℃未満までの昇温法	水素圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	Ar圧力 (atm)	保持温度 (℃)	保持時間 (min)	到達圧力 (Torr)	保持温度 (℃)	保持時間 (時間)
従 来 法	1	a	室温から100℃まで真空、 100℃から500℃未満 まで1気圧H ₂	1	850	20	-	-	-	0.98	830	40
	2	b		5	850	20	-	-	-	0.98	830	40
	3	c	室温から200℃まで真空、 200℃から500℃未満 まで1気圧H ₂	1	830	80	-	-	-	0.05	820	50
	4	d		1	830	60	-	-	-	0.05	820	50
	5	e		1	830	60	-	-	-	0.5	820	50
	6	f	室温から100℃まで真空、 100℃から500℃未満 まで1気圧H ₂	2	850	120	-	-	-	0.05	850	60
	7	g		1	850	120	-	-	-	0.2	850	80
	8	h		1	850	120	-	-	-	0.02	850	80
	9	i		1	850	120	-	-	-	0.2	850	60
	10	j		1.5	850	120	-	-	-	0.001	850	60

[0022]

* * [表6]

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		Br (k G)	i Hc (kOe)	BHmax (MG0e)	Br (k G)	i Hc (kOe)	BHmax (MG0e)
本 発 明 法	1	10. 1	11. 0	22. 1	12. 6	10. 7	36. 1
	2	8. 9	25. 4	18. 3	11. 1	25. 1	28. 6
	3	10. 2	11. 7	23. 0	12. 8	11. 4	37. 6
	4	9. 1	20. 3	18. 6	11. 4	18. 7	30. 2
	5	9. 8	10. 7	20. 7	12. 3	10. 3	33. 8
	6	9. 4	21. 6	20. 3	11. 8	20. 3	33. 0
	7	10. 1	11. 6	22. 5	12. 6	11. 7	35. 1
	8	9. 7	13. 1	20. 2	12. 1	12. 8	33. 5
	9	9. 8	7. 2	19. 4	12. 2	7. 0	32. 0
	10	9. 4	16. 3	19. 8	11. 8	15. 6	32. 7

[0023]

[表7]

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		B r (k G)	i H c (kOe)	B Hmax (MG0e)	B r (k G)	i H c (kOe)	B Hmax (MG0e)
本 発 明 法	11	10.0	11.4	21.8	12.5	11.3	34.3
	12	9.1	24.6	19.2	11.4	24.1	30.0
	13	10.0	11.8	22.0	12.5	11.7	34.7
	14	9.2	19.8	19.7	11.5	19.0	29.7
	15	9.6	10.7	20.1	12.0	10.8	32.8
	16	9.6	21.6	21.2	12.0	20.5	34.0
	17	9.7	12.7	20.6	12.2	12.5	33.8
	18	9.7	13.5	20.7	12.1	13.2	33.6
	19	9.7	7.0	18.8	12.1	7.1	32.1
	20	9.2	17.5	18.7	11.5	17.0	30.2

[0024]

[表8]

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)	B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)
本 発 明 法	21	9. 7	11. 4	20. 4	12. 1	11. 0	32. 2
	22	10. 1	12. 0	22. 1	12. 7	11. 6	35. 5
	23	10. 0	12. 1	21. 6	12. 5	11. 9	34. 6
	24	9. 9	12. 3	20. 8	12. 4	12. 1	35. 1
	25	9. 6	5. 9	18. 6	12. 0	5. 5	27. 1
	26	9. 9	8. 7	20. 8	12. 3	8. 6	32. 2
	27	10. 2	12. 0	23. 1	12. 8	11. 4	36. 2
	28	9. 8	12. 4	20. 6	12. 3	12. 1	33. 7
比 較 法	1	8. 8	8. 3	13. 7	10. 8	7. 7	17. 6
	2	3. 6	1. 4	<3	5. 3	0. 8	<3

【0025】

【表9】

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		Br (kG)	iHc (kOe)	BHmax (MG0e)	Br (kG)	iHc (kOe)	BHmax (MG0e)
従 来 法	1	9.6	11.1	18.8	12.0	10.7	30.4
	2	7.6	24.3	13.2	9.5	23.5	20.2
	3	9.3	11.9	18.5	11.5	12.2	29.7
	4	7.2	20.1	11.8	9.0	19.3	18.0
	5	9.4	10.1	18.0	11.7	10.2	29.5
	6	6.5	22.3	9.2	8.1	21.8	13.3
	7	9.5	11.8	19.7	11.8	11.3	30.0
	8	9.2	12.6	18.1	11.4	12.4	28.6
	9	8.7	8.4	15.5	11.0	8.3	25.4
	10	7.0	17.0	10.8	8.7	17.1	16.7

【0026】表1～9に示される結果から、中間熱処理する本発明法1～28により得られた希土類磁石粉末で作製したボンド磁石の磁気特性は、中間熱処理をしない従来法1～10により得られた希土類磁石粉末で作製したボンド磁石の磁気特性に比べて、磁気特性が向上していることが分かる。しかし、この発明の範囲外の比較法1～2により得られた希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性は劣ることが分かる。

【0027】さらに、中間熱処理する本発明法1～28により得られた希土類磁石粉末で作製したホットプレス磁石の磁気特性は、中間熱処理をしない従来法1～10により得られた希土類磁石粉末で作製したホットプレス磁石の磁気特性に比べて、磁気特性が向上していることが分かる。しかし、この発明の範囲外の比較法1～2により得られた希土類磁石粉末のホットプレス磁石の磁気特性は劣ることが分かる。

【0028】実施例2

実施例1で作製した表1に示される成分組成のR-T-M系合金原料またはR-T-M-A系合金原料の鑄塊a～jを表10に示される条件で均質化处理することにより均質化处理鑄塊A～Jを作製し、これら均質化处理鑄塊A～Jを表10に示される寸法のブロックまたは粉末になるように粉碎し、これらブロックまたは粉末を実施例1の本発明法1～28、比較法1～2および従来法1～10とそれぞれ同じ条件で昇温、水素吸蔵処理、中間熱処理、脱水素処理および冷却を行った後、300μm以下に粉碎して希土類磁石粉末を製造することにより本発明法29～56、比較法3～4および従来法11～20を実施した。得られた希土類磁石粉末を用いて実施例1と同じ条件でボンド磁石およびホットプレス磁石を作製し、このボンド磁石およびホットプレス磁石の磁気特性を表11～14に示した。

【0029】

【表10】

種 別	使用 鑄塊	均質化処理条件			ブロック又は 粉末の寸法	
		保持温度 (℃)	保持時間 (時間)	雰囲気		
均質化 処理 鑄塊	A	a	1 1 4 0	2 0	1気圧 Ar	<15mm
	B	b	1 1 2 0	3 0	真空	<5mm
	C	c	1 1 3 0	1 5	1気圧 Ar	<8mm
	D	d	1 1 1 0	4 0	真空	<500μm
	E	e	1 1 2 0	3 0	2気圧 Ar	<500μm
	F	f	1 1 4 0	2 0	1気圧 Ar	<10μm
	G	g	1 1 5 0	5	真空	<20mm
	H	h	1 1 0 0	2 0	1気圧 Ar	<400μm
	I	i	1 1 4 0	1 5	1気圧 Ar	<30mm
	J	j	1 1 3 0	3 0	1. 5気圧Ar	<15mm

【0030】

【表11】

種 別		均質化処 理鋳塊	昇温処理	水素吸蔵処理	中間熱処理	脱水素処理
本 発 明 法	29	A	実施例 1 の本発明法 1 と同じ			
	30	B	実施例 1 の本発明法 2 と同じ			
	31	C	実施例 1 の本発明法 3 と同じ			
	32	D	実施例 1 の本発明法 4 と同じ			
	33	E	実施例 1 の本発明法 5 と同じ			
	34	F	実施例 1 の本発明法 6 と同じ			
	35	G	実施例 1 の本発明法 7 と同じ			
	36	H	実施例 1 の本発明法 8 と同じ			
	37	I	実施例 1 の本発明法 9 と同じ			
	38	J	実施例 1 の本発明法 10 と同じ			

【0031】

【表 12】

種 別	均質化処理した鋳塊の種類	昇温処理	水素吸蔵処理	中間熱処理	脱水素処理
本 発 明 法	39	A	実施例 1 の本発明法 1 1 と同じ		
	40	B	実施例 1 の本発明法 1 2 と同じ		
	41	C	実施例 1 の本発明法 1 3 と同じ		
	42	D	実施例 1 の本発明法 1 4 と同じ		
	43	E	実施例 1 の本発明法 1 5 と同じ		
	44	F	実施例 1 の本発明法 1 6 と同じ		
	45	G	実施例 1 の本発明法 1 7 と同じ		
	46	H	実施例 1 の本発明法 1 8 と同じ		
	47	I	実施例 1 の本発明法 1 9 と同じ		
	48	J	実施例 1 の本発明法 2 0 と同じ		

【0032】

【表 13】

種 別		均質化処理した鋳塊の種類	昇温処理	水素吸蔵処理	中間熱処理	脱水素処理
本発明法	49	C	実施例1の本発明法21と同じ			
	50	C	実施例1の本発明法22と同じ			
	51	C	実施例1の本発明法23と同じ			
	52	C	実施例1の本発明法24と同じ			
	53	C	実施例1の本発明法25と同じ			
	54	C	実施例1の本発明法26と同じ			
	55	C	実施例1の本発明法27と同じ			
	56	C	実施例1の本発明法28と同じ			
比較法	3	C	実施例1の比較法1と同じ			
	4	C	実施例1の比較法2と同じ			

【0033】

【表14】

種 別	均質化処 理した鋳 塊の種類	昇温処理	水素吸蔵処理	中間熱処理	脱水素処理
従 来 法	11	A	実施例 1 の従来法 1 と同じ		
	12	B	実施例 1 の従来法 2 と同じ		
	13	C	実施例 1 の従来法 3 と同じ		
	14	D	実施例 1 の従来法 4 と同じ		
	15	E	実施例 1 の従来法 5 と同じ		
	16	F	実施例 1 の従来法 6 と同じ		
	17	G	実施例 1 の従来法 7 と同じ		
	18	H	実施例 1 の従来法 8 と同じ		
	19	I	実施例 1 の従来法 9 と同じ		
	20	J	実施例 1 の従来法 10 と同じ		

【0034】

【表 15】

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)	B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)
本 発 明 法	29	1 0 . 4	1 1 . 4	2 3 . 1	1 3 . 1	1 1 . 1	3 8 . 8
	30	9 . 3	3 1 . 6	1 9 . 8	1 1 . 7	3 0 . 5	3 1 . 5
	31	1 0 . 4	1 2 . 6	2 4 . 0	1 3 . 2	1 2 . 6	4 0 . 1
	32	9 . 5	2 4 . 3	2 0 . 6	1 2 . 0	2 3 . 7	3 3 . 6
	33	1 0 . 1	1 0 . 6	2 2 . 7	1 2 . 7	1 0 . 2	3 5 . 4
	34	9 . 6	2 1 . 5	1 9 . 5	1 2 . 1	2 1 . 6	3 4 . 2
	35	1 0 . 3	1 2 . 3	2 3 . 7	1 2 . 9	1 1 . 8	3 6 . 5
	36	9 . 9	1 2 . 8	2 1 . 6	1 2 . 4	1 2 . 5	3 4 . 3
	37	1 0 . 0	8 . 7	2 0 . 7	1 2 . 6	8 . 3	3 4 . 7
	38	9 . 7	1 8 . 5	2 0 . 1	1 2 . 1	1 7 . 8	3 3 . 0

[0035]

[表16]

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		B r (k G)	l H c (kOe)	BHmax (MG0e)	B r (k G)	l H c (kOe)	BHmax (MG0e)
本 発 明 法	39	1 0 . 2	1 2 . 3	2 3 . 3	1 2 . 8	1 2 . 4	3 6 . 1
	40	9 . 4	2 7 . 5	2 0 . 2	1 1 . 8	2 6 . 4	3 2 . 5
	41	1 0 . 3	1 2 . 3	2 3 . 6	1 3 . 0	1 2 . 1	3 7 . 6
	42	9 . 5	2 2 . 1	2 0 . 5	1 1 . 9	2 1 . 6	3 2 . 5
	43	9 . 8	1 0 . 8	2 0 . 7	1 2 . 3	1 0 . 4	3 4 . 0
	44	9 . 9	2 3 . 7	2 2 . 0	1 2 . 5	2 2 . 8	3 5 . 4
	45	1 0 . 0	1 3 . 3	2 2 . 7	1 2 . 6	1 3 . 4	3 5 . 0
	46	9 . 9	1 3 . 1	2 1 . 6	1 2 . 4	1 3 . 0	3 4 . 7
	47	9 . 9	8 . 4	2 0 . 4	1 2 . 3	8 . 2	3 2 . 2
	48	9 . 4	1 7 . 3	1 9 . 1	1 1 . 8	1 7 . 1	3 1 . 1

【0036】

【表17】

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		Br (k G)	i Hc (kOe)	BHmax (MG0e)	Br (k G)	i Hc (kOe)	BHmax (MG0e)
本 発 明 法	49	9. 9	12. 0	21. 6	12. 4	11. 8	34. 5
	50	10. 5	12. 2	24. 7	13. 2	12. 1	39. 8
	51	10. 3	12. 5	23. 1	12. 9	12. 5	37. 6
	52	10. 2	12. 5	22. 8	12. 8	12. 3	37. 0
	53	9. 8	7. 6	20. 6	12. 3	7. 5	32. 0
	54	10. 1	10. 4	23. 0	12. 6	9. 6	35. 1
	55	10. 4	12. 7	24. 5	13. 0	11. 8	37. 2
	56	9. 9	12. 5	20. 7	12. 4	12. 1	33. 4
比 較 法	3	8. 7	7. 8	14. 2	9. 8	6. 7	16. 7
	4	4. 1	2. 0	<3	5. 4	0. 5	<3

【0037】

【表18】

種 別		ボンド磁石			ホットプレス磁石		
		B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)	B r (k G)	i H c (kOe)	BHmax (MG0e)
従 来 法	11	9. 7	11. 5	19. 2	12. 1	11. 3	31. 5
	12	7. 8	31. 5	13. 8	9. 8	30. 7	21. 7
	13	9. 5	12. 3	20. 3	12. 0	12. 4	31. 1
	14	7. 4	24. 6	12. 2	9. 3	23. 1	19. 6
	15	9. 5	10. 3	18. 7	11. 9	10. 0	30. 2
	16	6. 7	21. 7	10. 1	8. 4	21. 5	15. 5
	17	9. 6	12. 3	19. 3	12. 0	12. 0	30. 6
	18	9. 5	12. 6	19. 2	12. 0	12. 1	30. 7
	19	8. 9	8. 8	17. 0	11. 1	8. 5	25. 9
	20	7. 3	18. 0	11. 7	9. 2	17. 7	17. 6

【0038】表10～18に示される結果から、均質化処理鋳塊A～Jを実施例1と同じ条件で昇温、水素吸蔵処理、中間熱処理、脱水素処理および冷却を行った後、300 μ m以下に粉砕する本発明法29～56により得られた希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性は、中間熱処理しない従来法11～20により得られた希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性よりも向上していることが分かる。しかし、この発明の範囲外の比較法3～4により得られた希土類磁石粉末のボンド磁石の磁気特性はやや劣ることが分かる。

【0039】さらに、本発明法29～56により得られた希土類磁石粉末をホットプレスして得られたホットプレス磁石は、従来法11～20により得られた希土類磁

石粉末をホットプレスして得られたホットプレス磁石よりも磁気特性が向上していることが分かる。しかし、比較法3～4により得られた希土類磁石粉末のホットプレス磁石の磁気特性はやや劣ることが分かる。

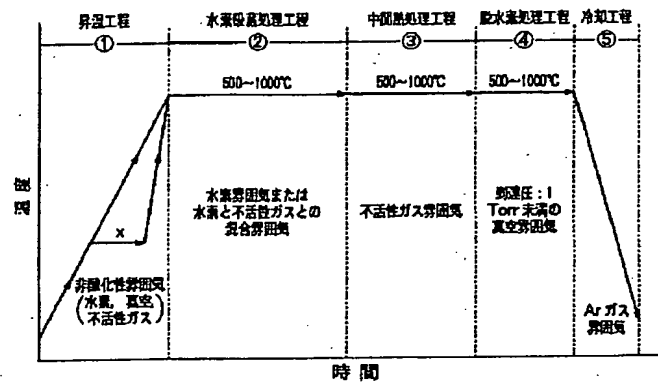
【0040】

【発明の効果】上述のように、中間熱処理を水素吸蔵処理と脱水素処理の間に挿入したこの発明の希土類磁石粉末の製造方法によると、従来よりも磁気特性に優れた希土類磁石粉末を提供することができ、産業上優れた効果を奏するものである。

【図面の簡単な説明】

【図1】この発明の希土類磁石粉末の製造方法を説明するための熱処理パターンの説明図である。

【図 1】



フロントページの続き

(72)発明者 森本 耕一郎
 埼玉県大宮市北袋町 1-297 三菱マテリ
 アル株式会社総合研究所内